

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 2 年 1 2 月 1 3 日  
Date of Application:

出 願 番 号                      特 願 2 0 0 2 - 3 6 2 3 9 1  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 2 - 3 6 2 3 9 1 ]

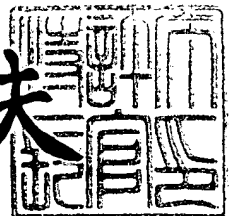
願                      人                      日 立 金 属 株 式 会 社  
plicant(s):

BEST AVAILABLE COPY

2 0 0 3 年 1 2 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 KM02B05  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 H01F 1/053  
H01F 1/08  
H01F 41/02

## 【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地 日立金属株式会社熊  
谷磁材工場内

【氏名】 塚田 高志

## 【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地 日立金属株式会社熊  
谷磁材工場内

【氏名】 松嶋 純二

## 【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地 日立金属株式会社熊  
谷磁材工場内

【氏名】 藤森 信彦

## 【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地 日立金属株式会社熊  
谷磁材工場内

【氏名】 木村 靖

## 【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地 日立金属株式会社熊  
谷磁材工場内

【氏名】 園田 和博

## 【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県熊谷市三ヶ尻 5 2 0 0 番地 日立金属株式会社熊  
谷磁材工場内

【氏名】 菊地 覚

## 【特許出願人】

【識別番号】 000005083

【氏名又は名称】 日立金属株式会社

【代表者】 本多 義弘

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 010375

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 永久磁石およびその製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項1】 質量百分率でR（RはYを含む希土類元素の内の少なくとも1種以上）27.0～31.0%、B0.5～2.0%、O0.05～0.25%、C0.01～0.15%、N0.002～0.15%、P0.001～0.05%、残部Feの組成を有し、外径10～100mm、内径8～96mm、高さ10～70mmで、円周方向に磁氣的異方性を有する焼結体の密度が $7.52 \times 10^3 \sim 7.85 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ であることを特徴とする永久磁石。

【請求項2】 Feの一部を質量百分率で0.3～5.0%のCo、0.05～1.0%のNb、0.02～1.0%のAl、0.01～0.5%のGa、0.01～1.0%のCuのうちの1種又は2種以上で置換していることを特徴とする請求項1に記載の永久磁石。

【請求項3】 質量百分率でR（RはYを含む希土類元素の内の少なくとも1種以上）31.0%超且つ33.5%以下、B0.5～2.0%、O0.25%超且つ0.60%、C0.01～0.15%、N0.002～0.05%、P0.001～0.05%、残部Feの組成を有し、外径10～100mm、内径8～96mm、高さ10～70mmで、円周方向に磁氣的異方性を有する焼結体の密度が $7.42 \times 10^3 \sim 7.75 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ であることを特徴とする永久磁石。

【請求項4】 Feの一部を質量百分率で0.3～5.0%のCo、0.05～1.0%のNb、0.02～1.0%のAl、0.01～0.5%のGa、0.01～1.0%のCuのうちの1種又は2種以上で置換していることを特徴とする請求項3に記載の永久磁石。

【請求項5】 固有保持力*iH<sub>c</sub>*が1.0kA/m以上であることを特徴とする請求項1乃至4のいずれかに記載の永久磁石。

【請求項6】 請求項1、2および5のいずれかに記載の永久磁石を製造する方法であって、所定の組成を有するR-Fe-B系永久磁石用の粗粉を、実質的に無酸素の窒素ガス又はアルゴンガスあるいはこれらの混合ガス中で、ジェッ

トミル粉碎して微粉碎粉とし、

前記微粉碎粉を大気に触れさせずに直接鉬物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に回収してスラリー状の原料とし、

前記スラリー状の原料を磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入し、

磁界を印加したまま湿式成形して成形体とし、

成形体を減圧下で加熱して成形体から鉬物油又は合成油あるいはこれらの混合油を除去した後、成形体を真空中で焼結して焼結体とすることを特徴とする、永久磁石の製造方法。

【請求項 7】 請求項 3、4、5 のいずれかに記載の永久磁石を製造する方法であって、所定の組成を有する R - F e - B 系永久磁石用の粗粉を、微量の酸素を導入した窒素ガス又はアルゴンガスあるいはこれらの混合ガス中で、ジェットミル粉碎して、含有酸素が質量百分率で 0. 2 5 % 超且つ 0. 6 % 以下の微粉碎粉とし、

前記微粉碎粉を鉬物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に回収してスラリー状の原料とし、

前記スラリー状の原料を磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入し、磁界を印加したまま湿式成形して成形体とし、

成形体を減圧下で加熱して成形体から鉬物油又は合成油あるいはこれらの混合油を除去した後、成形体を真空中で焼結して焼結体とすることを特徴とする、永久磁石の製造方法。

【請求項 8】 請求項 6 または 7 に記載の永久磁石の製造方法において、使用する鉬物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に流動性向上助剤として、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合することを特徴とする、永久磁石の製造方法。

【請求項 9】 請求項 6 乃至 8 のいずれかに記載の永久磁石の製造方法において、スラリー状の原料を金型キャビティ内に加圧注入する際に、ダイス内周面に開けられたスラリー注入孔の中心軸線の方が、センターコアの中心から外れるように設けられていることを特徴とする、永久磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

**【 0 0 0 1 】****【発明の属する技術分野】**

本発明は、円周方向に磁氣的異方性を有する、いわゆるラジアル異方性の焼結型 R - F e - B 系希土類永久磁石に関するものである。

**【 0 0 0 2 】****【従来の技術】**

円周方向に磁氣的異方性を有する、いわゆるラジアル異方性焼結型 R - F e - B 系希土類永久磁石は、径方向の自由な着磁が可能であり、セグメント磁石に比べてモータへの組込みが容易であることから、近年、サーボモータ、ブラシレスモータなどの回転機に多用されている。円周方向に磁氣的異方性を有する焼結型 R - F e - B 系希土類永久磁石を製造するには、これまでは R - F e - B 系希土類永久磁石の微粉碎粉を製造し、これを円筒状の金型キャビティ内に給粉して充填した後、円周方向に配向磁界を印加し、印加磁界の下で加圧成形して成形体とし、成形体を焼結して焼結体を製造していた（例えば、特許文献 1、特許文献 2）。また、R - F e - B 系希土類永久磁石の微粉碎粉を製造し、この微粉碎粉を有するスラリーを円筒状の金型キャビティ内に供給した後、円周方向に配向磁界を印加し、印加磁界の下で加圧成形して成形体とし、成形体を焼結して焼結体を製造している（例えば、特許文献 3、特許文献 4）。

**【 0 0 0 3 】****【特許文献 1】**

特開平 8 - 2 2 2 4 1 9 号公報（第 3 頁）

**【特許文献 2】**

特開平 9 - 2 3 3 7 7 6 号公報（第 2 ～ 3 頁、図 1）

**【特許文献 3】**

特開平 1 1 - 2 1 4 2 1 6 号公報（第 6 ～ 7 頁、図 1）

**【特許文献 4】**

特開平 7 - 5 7 9 1 4 号公報（第 8 頁、図 3）

**【 0 0 0 4 】****【発明が解決しようとする課題】**

しかし、この従来の製造方法には、いくつかの技術的な問題が在る。第1は、原料の給粉の問題である。ラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石用の金型キャビティは、中央にコアを有し、空間的には薄肉で奥深の円筒形である場合が多く、磁氣的に凝集しやすく且つ流動性の悪い微粉碎粉の乾粉を、金型キャビティ空間に均一に充填することは容易ではない。特に、微粉碎粉の円周方向での充填の不均一性が生じやすい。これは成形体密度の円周方向での不均一をもたらし、焼結体の変形やクラックの発生の原因となっていた。第2は、原料の配向性の問題である。ラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石を製造する際の、上記の磁界中成形時には、キャビティに微粉碎粉が充填された金型は、金型を構成するコアの中心軸が、配向磁界用リング状コイルの中心軸と一致するように配置され、この状態で配向と成形が為される。微粉碎粉が存在するキャビティ空間の配向磁界強度はコアを通過する総磁束量に依存するが、コアの断面積は最終的に得ようとするラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石の内径寸法によってほぼ一義的に決まる。

#### 【0005】

また、選択し得るコアの材質も、金型材料という理由でかなり限定される。従って、コアを通過する総磁束量は、コアの断面積とコア材質の飽和磁束密度の積でほぼ規定され、特にコアの内径が小さければ小さいほど、コアが磁氣的に飽和して配向磁界用リング状コイルに流す電流値の増加によって総磁束量を増加させることが困難となる。ラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石は、一般に内径寸法が小口径、中口径のものが多いため、コアを通過する総磁束量制限を受けやすく、その結果、キャビティ空間の配向磁界強度の値が十分に高いものではなく、微粉碎粉の配向性、しいては最終的に得られるラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石の配向性が不十分となると言う問題が在る。

#### 【0006】

これらの問題を解決するために、例えば、特許文献1や特許文献2では、コアを通過する限定された総磁束量で出来るだけ高い配向磁界強度を得るために、何段にも分けて微粉碎粉を給粉・成形して1個の成形体を成形するという、いわゆる多段成形法が提案されている。しかし、この製造方法では、1個の成形体を成

形するサイクルタイムが長くなり、成形能率が低下するという問題がある。また、多段成形時の接合部が、永久磁石表面の磁束密度の部分的な低下をもたらし、表面磁束密度の分布の不均一性から、モータにとって重要なコギング特性が悪くなる。

#### 【0007】

さらに、これらの問題を解決するために、特許文献3では、R-F e-B系希土類永久磁石磁粉と、鉱物油、合成油あるいは植物油を溶媒としたスラリー状の混合物を、スラリー供給管を金型キャビティ内に挿入して、吐出しながら引き抜いてキャビティに供給し、磁界を印加して加圧成形し、得られたリング状の成形体から溶媒を除去した後、焼結して焼結体を得る方法が提案されている。この製造方法では、スラリー状の原料をスラリー供給管を金型キャビティ内の奥深く挿入し、吐出しながら供給するため、比較的長尺のリング状の成形体を成形する場合でも、金型キャビティ空間へのスラリー状の原料の充填性が良いという利点がある。一方、スラリー供給管を金型キャビティの奥深くまで挿入する、スラリー状の原料を吐出しながらスラリー供給管を引き抜くと言うプロセスを伴うため、原料の供給時間が長くなり、成形のサイクルタイムが長くなるという欠点がある。また、スラリー供給管の位置が金型キャビティに充填されたスラリー状原料に穴洞となって残り、これが特異点となって、永久磁石焼結体のクラックが発生するという問題がある。

#### 【0008】

また、特許文献4には、希土類焼結型磁石用原料粉末と、鉱物油あるいは合成油とを混合し、この混合物を配向磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入した後、磁界中で湿式成形してリング状の成形体を成形し、成形体から溶媒を除去した後、真空焼結して焼結体を製造する方法が提案されている。この製造方法では、スラリー状の原料混合物を配向磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入するため、原料混合物中の微粉碎粉は、配向磁界方向に磁化容易方向を向けながら充填される。そのため成形体および最終的に得られる焼結体の配向性が高くなるという利点がある。一方、自発磁化の強さが大きいR-F e-B系の微粉碎粉からなるスラリー状の原料混合物のため、印加された配向磁界との相互作用によ



る拘束力が大きく、金型キャビティ内に十分な充填ができにくいという欠点があり、これによる成形体内部の密度が不均一となって、焼結体の変形やクラックの発生が生じるという問題がある。また、スラリー状の原料混合物を、金型キャビティの内周部に開けられた注入孔から、コアの中心方向に向かって加圧注入することによって、コアに衝突して2方向に分かれたスラリー状の原料が、注入孔と180度反対の位置で会合し、この会合部が焼結体のクラックの発生の原因となるという問題があった。

#### 【0009】

##### 【課題を解決するための手段】

本発明の目的は、以上の問題点を解決して、変形やクラックの発生が無く且つ磁氣的配向性に優れたラジアル異方性焼結型R-Fe-B系希土類永久磁石を製造することにある。

#### 【0010】

[1] 本発明の永久磁石は、質量百分率でR（RはYを含む希土類元素の内の少なくとも1種以上）27.0～31.0%、B0.5～2.0%、O0.05～0.25%、C0.01～0.15%、N0.002～0.15%、P0.001～0.05%、残部Feの組成を有し、外径10～100mm、内径8～96mm、高さ10～70mmで、円周方向に磁氣的異方性を有する焼結体の密度が $7.52 \times 10^3 \sim 7.85 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ であることを特徴とする。

ここで、望ましくはPの下限を0.0010%とする。永久磁石は、焼結体そのもの、または焼結体の表面にメッキ、コーティング若しくは表処理の少なくとも1種を施したものとすることができる。ただし、組成は“焼結体”の組成を指す。“焼結体の密度”はメッキ膜や樹脂膜など焼結体表面を覆うものを除いた状態で測定した密度に相当する。

#### 【0011】

[2] 上記[1]に記載の永久磁石で、Feの一部を質量百分率で0.3～5.0%のCo、0.05～1.0%のNb、0.02～1.0%のAl、0.01～0.5%のGa、0.01～1.0%のCuのうちの1種又は2種以上で置換していることを特徴とする。

## 【0 0 1 2】

〔3〕 本発明の他の永久磁石は、質量百分率で R（R は Y を含む希土類元素の内の少なくとも 1 種以上）3 1. 0 % 超且つ 3 3. 5 % 以下、B 0. 5 ~ 2. 0 %、O 0. 2 5 % 超且つ 0. 6 0 %、C 0. 0 1 ~ 0. 1 5 %、N 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 %、P 0. 0 0 1 ~ 0. 0 5 %、残部 F e の組成を有し、外径 1 0 ~ 1 0 0 mm、内径 8 ~ 9 6 mm、高さ 1 0 ~ 7 0 mm で、円周方向に磁氣的異方性を有する焼結体の密度が  $7. 4 2 \times 10^3 \sim 7. 7 5 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  であることを特徴とする。

ここで、望ましくは P の下限を 0. 0 0 1 0 % とする。

## 【0 0 1 3】

〔4〕 上記〔3〕に記載の永久磁石で、F e の一部を質量百分率で 0. 3 ~ 5. 0 % の C o、0. 0 5 ~ 1. 0 % の N b、0. 0 2 ~ 1. 0 % の A l、0. 0 1 ~ 0. 5 % の G a、0. 0 1 ~ 1. 0 % の C u のうちの 1 種又は 2 種以上で置換していることを特徴とする。

## 【0 0 1 4】

〔5〕 上記〔1〕乃至〔4〕のいずれかの永久磁石で、固有保持力  $i H_c$  が  $1. 0 \text{ k A/m}$  以上であることを特徴とする。なお、 $1. 0 (\text{ k A/m})$  は約  $1 3 (\text{ k O e})$  に相当する。

## 【0 0 1 5】

〔6〕 上記〔1〕、〔2〕、〔5〕のいずれかに記載の永久磁石を製造する方法であって、所定の組成を有する R - F e - B 系永久磁石用の粗粉を、実質的に無酸素の窒素ガス又はアルゴンガスあるいはこれらの混合ガス中で、ジェットミル粉碎して微粉碎粉とし、

前記微粉碎粉を大気に触れさせずに直接鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に回収してスラリー状の原料とし、

前記スラリー状の原料を磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入し、

磁界を印加したまま湿式成形して成形体とし、

成形体を減圧下で加熱して成形体から鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油を除去した後、成形体を真空中で焼結して焼結体とすることを特徴とする、永

久磁石の製造方法である。

【0 0 1 6】

[7] 上記 [3]、[4]、[5] のいずれかに記載の永久磁石を製造する方法であって、所定の組成を有する R - F e - B 系永久磁石用の粗粉を、微量の酸素を導入した窒素ガス又はアルゴンガスあるいはこれらの混合ガス中で、ジェットミル粉碎して、含有酸素が質量百分率で 0. 2 5 % 超且つ 0. 6 % 以下の微粉碎粉とし、

前記微粉碎粉を鉱物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に回収してスラリー状の原料とし、

前記スラリー状の原料を磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入し、磁界を印加したまま湿式成形して成形体とし、

成形体を減圧下で加熱して成形体から鉱物油又は合成油あるいはこれらの混合油を除去した後、成形体を真空中で焼結して焼結体とすることを特徴とする、永久磁石の製造方法である。

ここで、より詳細には含有酸素の上限値を 0. 6 0 % とすることが望ましい。

【0 0 1 7】

[8] 上記 [6] または [7] に記載の永久磁石の製造方法において、使用する鉱物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に流動性向上助剤として、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合することを特徴とする、永久磁石の製造方法である。

なお、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液に代えて、次亜リン酸ナトリウムを非水性溶媒に混合したものを用いることも可能である。溶媒の扱い易さを考慮すると、グリセリン又はエタノールを溶媒とする構成が望ましい。

【0 0 1 8】

[9] 上記 [6] 乃至 [8] のいずれかに記載の永久磁石の製造方法において、スラリー状の原料を金型キャビティ内に加圧注入する際に、ダイス内周面に開けられたスラリー注入孔の中心軸線の方が、センターコアの中心から外れるように設けられていることを特徴とする、永久磁石の製造方法である。

## 【0 0 1 9】

本発明では、流動性に優れたスラリー状の原料が用意される。このスラリー状の原料は、以下の様にして製造することができる。

質量百分率で R (R は Y を含む希土類元素の内の少なくとも 1 種以上) 2 7. 0 ~ 3 1. 0 %、B 0. 5 ~ 2. 0 %、O 0. 2 5 % 以下、C 0. 1 5 % 以下、N 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 %、残部 F e の組成を有する R - F e - B 系永久磁石用の粗粉、あるいは前記組成の F e の一部を質量百分率で 0. 3 ~ 5. 0 % の C o、0. 0 5 ~ 1. 0 % の N b、0. 0 2 ~ 1. 0 % の A l、0. 0 1 ~ 0. 5 % の G a、0. 0 1 ~ 1. 0 % の C u のうちの 1 種又は 2 種以上で置換した組成を有する R - F e - B 系永久磁石用の粗粉を、酸素の含有量が実質的に 0 % の N<sub>2</sub> ガス又は A r ガスあるいはこれらの混合ガス中で、ジェットミル粉碎し、平均粒径が 3 ~ 6  $\mu$  m の微粉碎粉とする。ジェットミルの微粉碎粉の回収口には、鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油の入った容器を設置し、この容器内も N<sub>2</sub> ガス又は A r ガスあるいはこれらの混合ガス雰囲気とし、微粉碎粉を大気に触れさせずに直接鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に回収してスラリー状の原料とする。

## 【0 0 2 0】

使用する鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油には、流動性向上助剤として、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合しておく。次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液や次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液の濃度には、特に制限は無いが、鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油に、これらの溶液を添加するに際しては、鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油に対して質量百分率で次亜リン酸ナトリウム純分の添加量が 0. 0 1 ~ 0. 5 % の範囲になる様に溶液を添加、混合する。次亜リン酸ナトリウム純分の添加量が 0. 0 1 % 未満であれば、原料スラリーの流動性の改善効果が得られない。鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油に次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液や次亜リン酸ナトリウムエタノールを混合すると、鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油は酸性を示すようになり、これらに回収された微粉碎粉は次亜リン酸ナトリウムの科学的に反応する。

## 【0021】

この結果、最終的に得られるラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石の P 量が増加する。ラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石の中で、P は、主相結晶粒の間に存在する粒界相である希土類元素に富む磁気的には非磁性の相に主に入る。P の微量な増加は、ラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石の保持力  $i H_c$  の増加と共に、耐食性の向上をももたらすため、好ましいことである。しかし、焼結体中の P の含有量が質量百分率で 0.05% を越えると、ラジアル異方性焼結型 R-F e-B 系希土類永久磁石の機械的強度が低下する。発明者らのこれまでの検討によると、焼結体中の P の含有量を 0.05% 以下にするためには、鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油に対する次亜リン酸ナトリウム純分の添加量を、質量百分率で 0.5% 以下にする必要がある。なお、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液や次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液の添加混合は、微粉碎粉を鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油に回収してスラリー状の原料とし、このスラリー状の原料に必要量を添加混合しても、同様のスラリー状原料の流動性の向上効果が得られる。

## 【0022】

また、以下の方法によっても、流動性に優れたスラリー状の原料を製造することができる。質量百分率で R (R は Y を含む希土類元素の内の少なくとも 1 種以上) 31.0% 超 (31.0% を含まず) 且つ 33.5% 以下、B 0.5~2.0%、O 0.60% 以下、C 0.15% 以下、N 0.002~0.05%、残部 F e の組成を有する R-F e-B 系永久磁石用の粗粉、あるいは前記組成の F e の一部を質量百分率で 0.3~5.0% の C o、0.05~1.0% の N b、0.02~1.0% の A l、0.01~0.5% の G a、0.01~1.0% の C u のうちの 1 種又は 2 種以上で置換した組成を有する R-F e-B 系永久磁石用の粗粉を、酸素の含有量が 0.005%~0.5% の N<sub>2</sub> ガス又は A r ガスあるいはこれらの混合ガス中でジェットミル粉碎し、平均粒径が 3~6  $\mu m$  の微粉碎粉とする。こうして得られた含有 O 量が 0.25% 超 (0.25% を含まず) 且つ 0.6% 以下の乾粉の微粉碎粉を、鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に混ぜてスラリー状の原料とする。

## 【0 0 2 3】

これらの鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油には、あらかじめ質量百分率で次亜リン酸ナトリウム純分の添加量が0.01～0.5%の範囲になる様に、油の流動性向上助剤である次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合しておく。あるいは、微粉碎粉を鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に混ぜてスラリー状の原料とし、このスラリー状の原料に所定量の次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合することもできる。

## 【0 0 2 4】

本発明の要点は、以上の様にして製造された流動性に優れたスラリー状の原料を、円周方向に配向磁界が印加されたリング状の金型キャビティに加圧注入するに際し、金型のダイス内周面に開けられたスラリー注入孔の中心軸線の方が、金型のコアの中心から外れる様に設けておき、加圧注入されたスラリー状の原料が、金型コアに垂直に衝突せずに、コアの外周面あるいはダイス内周面に沿って、なめらかほぼスパイラル状にリング状のキャビティを満たし、高い充填密度が得られる様にした点にある。

## 【0 0 2 5】

スラリー注入孔の中心軸線の方が金型コアの中心と一致した場合、加圧注入されたスラリー状の原料が金型コアに垂直に衝突し、左右2手に分かれて、スラリー注入孔と180°反対の位置で原料どうしが衝突する。このことによって、この位置にはいわゆる湯境いが生じ、最終的に得られる焼結体では、クラックが発生する。スラリー注入孔の中心軸線と金型コアの中心方向との成す角度 $\theta$ は、金型キャビティの寸法によってその適値は若干異なるが、5°～90°、好ましくは10°～90°である。金型キャビティへのスラリー状の原料の注入圧力は、特に限定されるものではないが、発明者らの検討結果では、 $4.9 \times 10^4 \text{ Pa} \sim 3.9 \times 10^6 \text{ Pa}$ （即ち、0.5～40 kgf/cm<sup>2</sup>）、好ましくは $9.8 \times 10^4 \text{ Pa} \sim 2.9 \times 10^6 \text{ Pa}$ （即ち、1～30 kgf/cm<sup>2</sup>）、さらに好ましくは $2.0 \times 10^5 \text{ Pa} \sim 1.5 \times 10^6 \text{ Pa}$ （即ち、2～15 kgf/cm<sup>2</sup>）である。

## 【0 0 2 6】

また、スラリー状の原料中の微粉碎粉を配向させるための、金型キャビティにあらかじめ印加しておく配向磁界の強さは、 $0.16 \text{ kA/m}$ 以上（即ち、 $2 \text{ kOe}$ 以上）、より好ましくは $0.24 \text{ kA/m}$ 以上（即ち、 $3 \text{ kOe}$ 以上）である。原料スラリーを加圧注入後、この配向磁界を維持したまま加圧湿式成形を行なう。配向磁界の強さが $0.16 \text{ kA/m}$ 未満（ $2 \text{ kOe}$ 未満）では、微粉碎粉は配向が不十分となり、良好な磁気特性が得られない。また、金型キャビティに $0.16 \text{ kA/m}$ 以上（ $2 \text{ kOe}$ 以上）の配向磁界をあらかじめ印加しておき、スラリー状の原料を上記の注入圧力の範囲で注入し、その注入の途中又は注入終了後に、当初の配向磁界強度よりも高い配向磁界を与え、その高い配向磁界下で加圧湿式成形しても良い。流動性の改善されたスラリー状の原料を、本発明の以上の注入、成形条件の元で湿式成形することによって、 $4.0 \times 10^3 \text{ kg/m}^3 \sim 4.8 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ （即ち、 $4.0 \sim 4.8 \text{ g/cc}$ ）という高い成形体密度を有する成形体を得られる。

## 【0 0 2 7】

成形体を減圧下で加熱して、成形体中の鉱物油又は合成油あるいはこれらの混合油を除去し、次いで真空中で焼結して焼結体とする。成形体の減圧下での加熱処理の条件は、真空度は $13.3 \text{ Pa}$ （約 $10^{-1} \text{ Torr}$ ）、加熱温度は $100^\circ\text{C}$ 以上である。加熱時間は成形体の重量や処理量によって異なるが、1時間以上が好ましい。焼結は $0.13 \text{ Pa}$ （約 $10^{-3} \text{ Torr}$ ）以下の真空下で、 $1000 \sim 1150^\circ\text{C}$ の範囲で行う。これによって、微粉碎時の雰囲気酸素の含有量が実質0%の条件下で微粉碎されたスラリー状の原料を用いた焼結体では、 $7.52 \times 10^3 \text{ kg/m}^3 \sim 7.85 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ （即ち、 $7.52 \sim 7.85 \text{ g/cc}$ ）という焼結体密度が、微粉碎時の雰囲気酸素の含有量が $0.005 \sim 0.5\%$ の条件下で微粉碎されたスラリー状の原料を用いた焼結体では、 $7.42 \times 10^3 \text{ kg/m}^3 \sim 7.75 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ （即ち、 $7.42 \sim 7.75 \text{ g/cc}$ ）の焼結体密度が得られる。また、いずれのスラリーでも、鉱物油などによる大気からの遮断効果によって、微粉碎粉や成形体の酸化が防止され、前者のスラリーでの焼結体の含有O量は $0.05 \sim 0.25\%$ 、後者の

スラリーでの焼結体の含有O量は0.25超且つ0.60%以下(0.25%は含まず)となる。

#### 【0028】

以上、述べた本発明では、円周方向に印加された配向磁界強度の下で、リング形状の金型キャビティに、流動性が改善された原料スラリーを、ほぼスパイラル状になめらかに加圧注入して高い原料充填性とそれによる高い成形体密度が得られ、成形体や焼結体の割れ、欠け、変形などの発生が防止される。従って、製品寸法で外径 $\phi$ 10~100mm、内径 $\phi$ 8~96mm、高さ10~70mmという、円周方向に磁氣的異方性を有する永久磁石焼結体の製造が可能となる。

#### 【0029】

最後に、本発明の永久磁石焼結体の組成の限定理由を説明する。微粉碎時の雰囲気の酸素の含有量が実質0%の条件下で微粉碎されたスラリー状の原料を用いた焼結体の組成は、質量百分率でR(RはYを含む希土類元素の内の少なくとも1種以上)27.0~31.0%、B0.5~2.0%、O0.05~0.25%、C0.01~0.15%、N0.002~0.15%、P0.001~0.05%、残部Feとされる。また、Feの一部を質量百分率で0.3~5.0%のCo、0.05~1.0%のNb、0.02~1.0%のAl、0.01~0.5%のGa、0.01~1.0%のCuのうちの1種又は2種以上で置換しても良い。

#### 【0030】

焼結体のO量が0.25%以下の場合、希土類元素であるRの量が31.0%を超えると、焼結体内部の希土類に富む相の量が多くなり且つ形態も粗大化して、耐蝕性が悪くなる。一方、希土類元素の量が27.0%未満であると、焼結体の緻密化に必要な液相量が不足して焼結体密度が低下し、同時に磁気特性のうち残留磁束密度Brと保持力iHcが共に低下する。従って、希土類元素Rの量は、質量百分率で27.0~31.0%とされる。Bの量は質量百分率で0.5~2.0%とされる。Bの量が0.5%未満の場合、主相であるR<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B相の形成に必要なBが不足し、軟磁性的な性質を有するR<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>相が生成して保持力iHcが低下する。一方、Bの量が2.0%を越えると、非磁性相である



Bに富む相が増加して、残留磁束密度 $B_r$ が低下する。Oの量は質量百分率で0.05～0.25%とされる。

#### 【0031】

Oの量が0.25%を超える場合には、希土類元素の一部が酸化物を形成し、磁氣的に有効な希土類元素が減少して保持力 $iH_c$ が低下する。一方、融解によって作製するインゴットのO量の水準は最大0.04%であるため、最終の焼結体O量をこの値以下とすることは困難であり、O量は0.05～0.25%とすることが好ましい。C量は質量百分率で0.01～0.15%とされる。Cの値が0.15%より多い場合には、希土類元素の一部が炭化物を形成し、磁氣的に有効な希土類元素が減少して保持力 $iH_c$ が低下する。C量は0.12%以下とすることが好ましく、0.10%以下とすることがさらに好ましい。一方、溶解によって作製するインゴットのC量の水準は最大0.008%であり、最終の焼結体のC量をこの値以下とすることは困難であり、焼結体のC量は0.002～0.15%とされる。

#### 【0032】

溶解したインゴットを粗粉化する過程で大気中の窒素による微量な窒化が生じ、粗粉のN量は質量百分率で0.002～0.05%となる。この粗粉を酸素の含有量が実質的に0%の $N_2$ ガス又はArガスあるいはこれらの混合ガスの中でジェットミル粉碎する。ここで言う酸素の含有量が実質的に0%とは、酸素の含有量が0.001%以下、より好ましくは0.0005%以下、さらに好ましくは0.0002%以下の酸素濃度雰囲気の意味するが、この様な実質的に無酸素の $N_2$ ガス又はArガス又はArガスと $N_2$ ガスの混合ガスの雰囲気中で粗粉を微粉碎すると、雰囲気中の嫉妬による窒化が生じる。N量の増加は、最終的に得られる焼結体の耐蝕性を向上させるため好ましいものではあるが、N量が0.15%を超えると、窒化によって保持力の発現に必要な希土類元素の量が減少して保持力 $iH_c$ が低下する。従って、最終的に得られる焼結体のNの量が0.15%を超えないように、微粉碎時のジェットミルへの単位時間当たりの粗粉の供給量や、Arガスと $N_2$ ガスの混合ガスの両ガスの混合比率が、条件出しでのデータを基に制御される。

## 【0 0 3 3】

また、この場合、微粉碎時粉の平均粒径の狙い値を  $3 \sim 6 \mu\text{m}$  とすると、微粉碎粉の N 量が 0. 0 2 % 以上となることは避けられない。このため、焼結体の N 量が質量百分率で 0. 0 2 ~ 0. 1 5 % となる。また、A r ガス雰囲気での微粉碎では、窒化が生じないため、粗粉の窒素量の値を反映して、得られる焼結体の N 量は質量百分率で 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 % となる。

## 【0 0 3 4】

以上の理由から、焼結体の N 量は 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 % とされる。P 量は質量百分率で 0. 0 0 1 % ~ 0. 0 5 % とされる。油の流動性を改善するため、鉱物油又は合成油あるいはこれらの混合油には、次亜リン酸ナトリウムの純分が 0. 0 1 % 以上になる様に、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加、混合する必要がある。これ以下の添加量では、流動性の改善効果が得られないからである。この結果、最終的に得られる焼結体には、質量百分率で 0. 0 0 1 % の P が含有される。焼結体への P の含有は、耐蝕性と保持力  $i H c$  の向上につながるため好ましいものであるが、焼結体の P の含有量が 0. 0 5 % を超えると、焼結体の強度が低下する。このため、油に対して次亜リン酸ナトリウムの純分が質量百分率で 0. 5 % を超えないように、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液又は次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液の添加混合量は制御される。この様な理由から、焼結体の P 量は質量百分率で 0. 0 0 1 ~ 0. 0 5 % とされる。

## 【0 0 3 5】

本発明の永久磁石焼結体では、F e の一部を C o、N b、A l、G a、C u のうちの 1 種又は 2 種以上で置換することができる。以下に各元素の置換量（ここでは置換後の永久磁石焼結体の全組成に対する質量百分率）の限定理由を説明する。C o の置換量は、0. 3 ~ 5. 0 % とされる。C o の添加はキュリー点の向上、即ち、飽和磁化の温度係数の改善をもたらす。C o の置換量が 0. 3 % より少ない場合には、温度係数の改善効果は小さい。C o の置換量が 5. 0 % を超えると、残留磁束密度  $B r$ 、保持力  $i H c$  が共に急激に低下する。

## 【0 0 3 6】

Nbの置換量が0.05～1.0%とされる。Nbの添加によって焼結過程でNbのホウ化物が生成し、これが結晶粒の異常粒成長を抑制する。Nbの置換量が0.05%より少ない場合には、結晶粒の異常粒成長の抑制効果が十分でなくなる。一方、Nbの置換量が1.0%を越えると、Nbのホウ化物の生成量が多くなるため、残留磁束密度Brが低下する。Alの置換量は0.02～1.0%とされる。Alの添加は保持力iHcを高める効果がある。Alの置換量が0.02%より少ない場合には、保持力iHcの向上効果が少ない。置換量が1.0%を超えると、残留磁束密度Brが急激に低下する。

#### 【0037】

Gaの置換量は0.01～0.5%とされる。Gaの微量添加は保持力iHcの向上をもたらすが、置換量が0.01%より少ない場合には、添加効果は少ない。一方、Gaの置換量が0.5%を超えると、残留磁束密度Brの低下が顕著になるとともに、保持力iHcも低下する。Cuの置換量は0.01～1.0%とされる。Cuの微量添加は保持力iHcの向上をもたらすが、添加量が1.0%を超えるとその添加効果は飽和する。添加量が0.01%より少ない場合には、保持力iHcの向上効果は小さい。

#### 【0038】

微粉碎時の雰囲気酸素の含有量が0.005から0.5%の条件下で微粉碎された乾粉の微粉碎粉を油と混合して作製したスラリー状の原料を用いた焼結体の組成は、質量百分率でR（RはYを含む希土類元素の内の少なくとも1種以上）31.0%超且つ33.5%以下、B0.5～2.0%、O0.25%超且つ0.60%、C0.01～0.15%、N0.002～0.05%、P0.001～0.05%、残部Feとされる。また、Feの一部を質量百分率で0.3～5.0%のCo、0.05～1.0%のNb、0.02～1.0%のAl、0.01～0.5%のGa、0.01～1.0%のCuのうちの1種又は2種以上で置換してもよい。上記の条件下で微粉碎された平均粒径が3～6μmの乾粉の微粉碎粉の含有量は0.25%超且つ0.60%以下である。

#### 【0039】

この微粉碎粉を鉱物油又は合成油あるいはこれらの混合油と混ぜてスラリー状

の原料とし、これを磁界中で湿式成形して、成形体を先に記した条件で脱油、焼結した場合、鉍物油等による大気からの遮断効果によって、微粉碎粉や成形体の酸化が防止され、焼結体の含有 O 量は、微粉碎粉の含有 O 量の値と変わらないものとなる。従って、焼結体の O 量は 0. 2 5 % 超且つ 0. 6 0 % 以下とされる。焼結体の O 量が 0. 2 5 % 超且つ 0. 6 0 % 以下の場合、希土類元素の量が 3 3 . 5 % を越えると焼結体内部の希土類に富む相の量が多くなり、かつ形態も粗大化して耐食性が悪くなる。一方、希土類元素の量が 3 1. 0 % 以下であると、焼結体の緻密化に必要な液相量が不足して焼結体密度が低下し、磁気特性のうち残留磁束密度  $B_r$  と保持力  $i H_c$  が共に低下する。従って、希土類元素 R の量は 3 1. 0 % 超且つ 3 3. 5 % 以下とされる。

#### 【 0 0 4 0 】

N の量は 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 % とされる。先に記した様に、粗粉の N 量は質量百分率で 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 % である。この粗粉を、微粉碎時の雰囲気酸素の含有量が 0. 0 0 5 ~ 0. 5 % という高い酸素濃度の下で微粉碎した場合、粗粉の中の希土類元素と酸素との間の酸化反応が優先して起こり、窒化反応はほとんど無視できる程度に抑制される。従って得られた乾粉の微粉碎粉の N 量は粗粉の N 量とほとんど変化せず、質量百分率で 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 % の値が維持される。この様な微粉碎粉を鉍物油等と混合してスラリー状の原料とし、これを成形、脱油、焼結すると、微粉や成形体の N 量は鉍物油等による大気からの遮断効果によって変化せず、このため焼結体の N 量も同等の値となる。この様な理由から、焼結体の N 量は質量百分率で 0. 0 0 2 ~ 0. 0 5 % とされる。焼結体の B 量、C 量、P 量、C o 量、N b 量、A l 量、G a 量、C u 量の規定範囲は、各々、先に示す値であるが、これらの規定の範囲とその理由は、微粉碎時の雰囲気酸素の含有量が実質 0 % の条件下で微粉碎されたスラリー状の原料を用いた焼結体の場合と同一である。

#### 【 0 0 4 1 】

なお、本願明細書および特許請求の範囲において、質量百分率、すなわち質量 % ( m a s s % ) は物質の質量で組成比を表している。すなわち、永久磁石の焼結体の単位質量に対して各元素成分がどれくらいの質量で含有されているかを表

す。本願明細書中では、体積％表示するか又は特にことわらない限り、組成の「％」表示は質量％として表記している。さらに、本願明細書および特許請求の範囲において、各元素の組成比の範囲の記載を、例えば、「N 0. 0 0 2 ~ 0. 1 5 %」と記載したものは「窒素Nは0. 0 0 2 %以上且つ0. 1 5 %以下の範囲で含有される」という表現と等価な記載として用いている。組成毎の質量％は、例えば焼結型永久磁石を蛍光X線分析により測定して調べる。組成比の判っている材料若しくは市販の基準材料を基準として、測定対象と蛍光X線の強度を比較することにより、測定対象に含有される元素の数の比を求め、原子量を元に前記数に含有される元素毎の質量に換算して求めることができる。

#### 【0 0 4 2】

##### 【発明の実施の形態】

##### （実施例1）

質量百分率で、N d 1 9. 8 5 %、P r 8. 9 5 %、D y 1. 0 0 %、B 1. 0 2 %、A l 0. 1 0 %、C o 2. 0 0 %、C u 0. 1 0 %、O 0. 1 5 %、C 0. 0 4 %、N 0. 0 2 %、残部F eの組成を有するR - F e - B系永久磁石用の粗粉をジェットミルに装入し、ジェットミルの内部をN<sub>2</sub>ガスで置換してN<sub>2</sub>ガス中の酸素濃度を実質的に0%（体積％で0. 0 0 0 2 %以下）とし、このN<sub>2</sub>ガスの雰囲気下で粉碎圧力6. 9 × 1 0<sup>5</sup> P a（即ち、7. 0 k g f / c m<sup>2</sup>）、粗粉の供給量1 5 k g / hの条件で微粉碎した。微粉碎粉をジェットミルの排出口に設置された鉱物油（スーパーゾルP A 3 0、出光興産製）中に、大気に触れさせずに直接回収してスラリー状の原料とした。

#### 【0 0 4 3】

この鉱物油には、鉱物油に対する次亜リン酸ナトリウムの純分が、質量百分率で0. 1 %になるように5 %次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液をあらかじめ添加混合しておいた。また鉱物油と回収微粉碎粉の質量比率は1 : 3となるようにして行った。なお、微粉碎粉の平均粒径は4. 5 μ mであった。このようにして作製したスラリー状の原料を、図1に示すような金型と配向磁界発生コイルの配置の下で加圧注入し成形した。

#### 【0 0 4 4】

図1は、成形装置を説明するための概略図である。符号11で示す箇所は、成形装置の従断面を表す。符号12で示す箇所は同成形装置のダイス近傍の横断面とその拡大図(四角で囲った領域)を表す。金型は、円柱状のコア4と円筒状のダイス3に挟まれ且つパンチ9及び上パンチ10に囲われた領域でキャビティ6を構成する。ダイス3はダイスケース2に支持されている。コア4に磁界を印加するための磁界発生コイル1がコアの上下に1つずつ配置されており、コア4を通して磁力線7をキャビティ6に印加することができる。ダイスケース2にはスラリ注入孔5が設けられており、磁界を印加したキャビティ6にスラリを注入するためのものである。

#### 【0045】

図1において、加圧注入時のスラリ注入孔5の中心軸線方向と金型コア4の中心への方向の成す角度 $\theta$ は $30^\circ$ とした。注入時の円周方向に印加されたキャビティ空間の配向磁界強度は $0.24\text{ kA/m}$ (即ち、 $3\text{ kOe}$ )、スラリ状の原料の加圧注入圧力は $3.9 \times 10^5\text{ Pa}$ (即ち、 $4\text{ kgf/cm}^2$ )であった。スラリ状の原料を注入後、印加した配向磁界強度を $0.24\text{ kA/m}$ (即ち、 $3\text{ kOe}$ )に維持したまま、 $7.8 \times 10^7\text{ Pa}$ (即ち、 $0.8\text{ ton/cm}^2$ )の成形圧力で磁界中で湿式成形し、 $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$ (外径×内径×高さ：単位mm)の成形体を得た。成形体の密度は $4.30 \times 10^3\text{ kg/m}^3$ (即ち、 $4.30\text{ g/cc}$ )であった。

#### 【0046】

この成形体を $6.7 \times 10^3\text{ Pa}$ (即ち、 $5 \times 10^{-2}\text{ Torr}$ )の減圧下で $200^\circ\text{C} \times 2\text{ h}$ の脱油処理を行い、引き続き $2.7 \times 10\text{ Pa}$ ( $2 \times 10^{-4}\text{ Torr}$ )の減圧下で $1050^\circ\text{C} \times 3\text{ h}$ の焼結を行った。得られた焼結体の寸法は $\phi 20.0 \times \phi 15.0 \times 26.0$ (外径×内径×高さ：単位はmm)、焼結体の密度は $7.58 \times 10^3\text{ kg/m}^3$ (即ち、 $7.58\text{ g/cc}$ )であった。焼結体には、 $500^\circ\text{C} \times 2\text{ h}$ の熱処理を施した。この焼結体を加工し、 $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$ (外径×内径×高さ：単位はmm)の製品寸法に仕上げ、4極着磁を行って表面磁束密度の測定を行ったところ、表1および表2に示すように高いピーク値を得た。

## 【0047】

また、焼結体20から図2に示すように5mm×7mm×1mmの測定用の試料21bを切り出し（21は切り出す前の試料を示す。1mm厚さの向きが磁化方向に沿う。）、これを1mmの方向に8枚重ねて磁気特性を測定したところ、表1および表2に示すような高い値が得られた。試料の1mm厚さの向きは試料の磁化方向に相当する。また、焼結体の組成を分析したところ、質量百分率でNd 19.85%、Pr 8.95%、Dy 1.00%、B 1.02%、Al 0.10%、Co 2.00%、Cu 0.10%、O 0.17%、C 0.06%、N 0.05%、P 0.01%、残部Feという分析結果を得た。また、この焼結体（焼結体から切り出したものの断面）をEPMAでライン分析したところ、図3に示すようにPのピークが確認できた。図3から、Pは主に粒界（結晶組織の粒界）の希土類に富む相に存在していることが分かる。

## 【0048】

## （実施例2）

実施例1と同じ粗粉を、実施例1と同一条件で微粉碎し、微粉碎粉を同じ要領で鉍物油（スーパーゾルPA30、出光興産製）に回収してスラリー状の原料とした。鉍物油と回収微粉との質量比率は同じく1：3となるようにした。微粉碎粉の平均粒径は4.8μmであった。このスラリー状の原料に、鉍物油に対する次亜リン酸ナトリウムの純分が質量百分率で0.3%になるように、10%次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合した。このスラリー状の原料を、実施例1と同じ条件で、加圧注入と磁界中での湿式成形をおこなった。ただし、加圧注入時のスラリー注入孔の中心軸線方向と金型コアの中心への方向の成す角度θは5°とした。これによって同じくφ24.5×φ17.4×30.0（外径×内径×高さ：単位mm）の成形体を得た。

## 【0049】

成形体密度は4.40×10<sup>3</sup>kg/m<sup>3</sup>（即ち、4.40g/cc）であった。この成形体を実施例1と同一条件で脱油、焼結し、φ20.1×φ14.9×26.2（外径×内径×高さ：単位mm）の寸法の焼結体を得た。焼結体密度は7.56×10<sup>3</sup>kg/m<sup>3</sup>（即ち、7.56g/cc）であった。この焼結

体に  $500^{\circ}\text{C} \times 2\text{ h}$  の熱処理を施した。この焼結体を加工し、実施例 1 と同じ  $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$  (外径  $\times$  内径  $\times$  高さ：単位 mm) の製品寸法に仕上げ、実施例 1 と同じ条件で 4 極着磁を行った。表面磁束密度の測定を行ったところ、表 1 および表 2 に示すように高いピーク値を得た。

#### 【0050】

また焼結体から図 2 に示すように測定用の試料を切り出した。試料の切り出し位置と寸法および磁気特性の測定条件は実施例 1 と同一とした。磁気特性の測定結果を表 1 および表 2 に示すような良好な値を得た。また、焼結体の組成を分析したところ、質量百分率で Nd 19.85%、Pr 8.95%、Dy 1.00%、B 1.02%、Al 0.10%、Co 2.00%、Cu 0.10%、O 0.16%、C 0.06%、N 0.04%、P 0.03%、残部 Fe という分析結果を得た。また、この焼結体を EPMA でライン分析した結果、図 4 に示すように P のピークが確認できた。

#### 【0051】



【表 1】

	成形体寸法 (mm)	成形体密度 ( $\times 10^3 \text{ kg/m}^3$ )	焼結体寸法 (mm)	製品寸法 (mm)	表面磁束密度 のピーク値 ( $\times 10^2 \text{ T}$ )
実施 例 1	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.30	$\phi 20.0 \times \phi 15.0 \times 26.0$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	4.5 (4 極着磁)
実施 例 2	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.40	$\phi 20.1 \times \phi 14.9 \times 26.2$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	4.5 (4 極着磁)
実施 例 3	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.25	$\phi 19.9 \times \phi 15.1 \times 26.1$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	4.6 (4 極着磁)
実施 例 4	$\phi 114.0 \times \phi 95.0 \times 20.5$	4.28	$\phi 92.5 \times \phi 81.5 \times 18$	$\phi 91.5 \times \phi 80.5 \times 16$	5.2 (16 極着磁)
実施 例 5	$\phi 50.0 \times \phi 40.0 \times 76.0$	4.15	$\phi 40.4 \times \phi 35.0 \times 65.2$	$\phi 40.0 \times \phi 35.4 \times 64.2$	4.3 (8 極着磁)
比較 例 1	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.35	$\phi 20.2 \times \phi 15.1 \times 25.9$	加工時破損	未評価
比較 例 2	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 26.5$	3.80	$\phi 19.7 \times \phi 14.8 \times 23.3$	加工不能	未評価
比較 例 3	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.29	$\phi 20.1 \times \phi 15.1 \times 25.9$	加工不能	未評価
比較 例 4	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.32	$\phi 20.3 \times \phi 15.2 \times 25.8$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	3.2 (4 極着磁)
実施 例 6	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	4.45	$\phi 20.2 \times \phi 15.1 \times 25.8$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	2.9 (8 極着磁)
比較 例 5	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	3.78	$\phi 20.1 \times \phi 15.0 \times 25.9$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	2.9 (8 極着磁)
比較 例 6	$\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$	3.74	$\phi 20.0 \times \phi 14.9 \times 26.1$	$\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$	3.1 (8 極着磁)

【0052】

【表 2】

	磁気特性		
	B r ( $\times 10^2$ T)	i H c ( $\times 79$ k A/m)	(B H)m ( $\times 0.126$ k J/m <sup>3</sup> )
	B r (k G)	i H c (k O e)	(B H)m (M G O e)
実施例 1	13.4	16.0	41.1
実施例 2	13.4	16.4	41.2
実施例 3	13.5	15.8	41.6
実施例 4	13.6	15.5	42.2
実施例 5	13.4	16.2	41.0
比較例 1	13.4	16.9	41.3
比較例 2	13.3	16.4	40.2
比較例 3	13.4	16.2	41.1
比較例 4	11.8	18.3	29.5
実施例 6	12.2	23.5	34.5
比較例 5	11.4	24.0	28.6
比較例 6	11.8	23.8	31.0

## 【0053】

(実施例 3)

実施例 1 で作製したスラリー状の原料を、実施例 1 と同一の条件で金型キャビティに加圧注入し、磁界中で湿式成形した。ただし、金型キャビティにはあらかじめ円周方向に  $0.24$  k A/m (即ち、 $3$  k O e) の配向磁界を印加しておき、ここにスラリー状の原料を  $3.9 \times 10^5$  Pa (即ち、 $4$  k g f/cm<sup>2</sup>) の加圧注入圧力で注入し、注入開始後  $0.5$  秒後に印加配向磁界の強度を  $0.40$  k A/m (即ち、 $5$  k O e) に増加し、注入終了後、この磁界強度をそのまま維持しながら、磁界中で湿式成形した。これによって  $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$  (外径×内径×高さ：単位 mm) の成形体を得た。

## 【0054】

成形体の密度は  $4.25 \times 10^3$  k g/m<sup>3</sup> ( $4.25$  g/cc) であった。この成形体を実施例 1 と同一の条件で脱油と焼結をおこない、 $\phi 19.9 \times \phi 15.1 \times 26.1$  の寸法 (外径×内径×高さ：単位 mm) の焼結体を得た。焼結

体の密度は  $7.59 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  ( $7.59 \text{ g/cc}$ ) であった。この焼結体を実施例 1 と同一の条件で熱処理し、製品寸法  $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$  (外径×内径×高さ：単位 mm) に加工後、4 極着磁をして、その表面磁束密度を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような良好な値を得た。また、実施例 1 と同一の条件で切り出した試料の磁気特性を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような高い値が得られた。

#### 【0055】

##### (実施例 4)

実施例 1 で作製したスラリー状の原料を、実施例 1 と基本的には同一の条件で金型キャビティに加圧注入し、磁界中で湿式成形した。ただし、金型は大口径リング磁石用に変更した。また、加圧注入時のスラリー注入孔の中心軸線方向と金型コアの中心への方向の成す角度  $\theta$  は  $45^\circ$  とした。注入時の円周方向に印加されたキャビティ空間の配向磁界強度は  $0.47 \text{ kA/m}$  (即ち、 $6 \text{ kOe}$ )、加圧注入圧力は  $5.9 \times 10^5 \text{ Pa}$  (即ち、 $6 \text{ kgf/cm}^2$ ) であった。スラリー状の原料を注入後、印加した配向磁界強度を  $0.47 \text{ kA/m}$  (即ち、 $6 \text{ kOe}$ ) に維持したまま、 $4.9 \times 10^7 \text{ Pa}$  (即ち、 $0.5 \text{ ton/cm}^2$ ) の成形圧力で磁界中で湿式成形し、 $\phi 114.0 \times \phi 95.0 \times 20.5$  (外径×内径×高さ：単位 mm) の成形体を得た。

#### 【0056】

成形体の密度は  $4.28 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  ( $4.28 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を実施例 1 と同一の条件で脱油、焼結し、 $\phi 92.5 \times \phi 81.5 \times 18$  の寸法 (外径×内径×高さ：単位 mm) の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.57 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.57 \text{ g/cc}$ ) であった。焼結体には  $500^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。この焼結体を加工して  $\phi 91.5 \times \phi 80.5 \times 16$  (外径×内径×高さ：単位 mm) の寸法の製品寸法に仕上げ、16 極着磁を行って表面磁束密度を測定したところ、表 1 および表 2 に示すように良好な値を得た。また、焼結体から  $5 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 2 \text{ mm}$  の測定用の試料を切り出し、これを  $2 \text{ mm}$  方向に 4 枚重ねて磁気特性を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような高い値が得られた。

## 【0 0 5 7】

## (実施例 5)

実施例 1 で作製したスラリー状の原料を、実施例 1 と基本的に同一の条件で金型キャビティに加圧注入し、磁界中で湿式成形した。ただし、金型は中口径の長尺リング磁石用に変更した。また、加圧注入時のスラリー注入孔の中心軸線方向と金型コアの中心への方向の成す角度  $\theta$  は  $15^\circ$  とした。注入時の円周方向に印加されたキャビティ空間の配向磁界強度は  $0.20 \text{ kA/m}$  (即ち、 $2.5 \text{ kOe}$ )、加圧注入圧力は  $2.0 \times 10^5 \text{ Pa}$  (即ち、 $2 \text{ kgf/cm}^2$ ) であった。スラリー状の原料を注入後、印加した配向磁界強度を  $0.63 \text{ kA/m}$  (即ち、 $8 \text{ kOe}$ ) に増加させ、この配向磁界強度を維持したまま、 $3.9 \times 10^7 \text{ Pa}$  (即ち、 $0.4 \text{ ton/cm}^2$ ) の成形圧力で磁界中で湿式成形し、 $\phi 50 \times \phi 40 \times 76$  の寸法 (外径×内径×高さ：単位mm) の成形体を得た。

## 【0 0 5 8】

成形体の密度は  $4.15 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $4.15 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を実施例 1 と同一の条件で脱油、焼結し、 $\phi 40.4 \times \phi 35.0 \times 65.2$  の寸法 (外径×内径×高さ：単位mm) の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.59 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.59 \text{ g/cc}$ ) であった。焼結体には  $500^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。この焼結体を加工し  $\phi 40.0 \times \phi 35.4 \times 64.2$  の寸法の製品寸法に仕上げ、8 極用着磁を行って表面磁束密度を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような良好な値を得た。また、焼結体から  $5 \text{ mm} \times 8 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用の試料を切り出し、これを  $1 \text{ mm}$  方向に 8 枚重ねて磁気特性を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような高い値が得られた。

## 【0 0 5 9】

## (比較例 1)

実施例 1 と同じ粗粉を、実施例 1 と同一条件で微粉碎し、微粉碎粉を同じ要領で鉬物油 (スーパーゾル P A 3 0、出光興産製) に回収してスラリー状の原料とした。鉬物油と回収微粉との質量比率は 1 : 3 となるようにした。微粉碎粉の平均粒径は  $4.5 \mu\text{m}$  であった。鉬物油に対する次亜リン酸ナトリウムの純分が、

質量百分率で 1.0% になるように、5% 次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液をあらかじめ鉍物油中に添加混合しておいた。このスラリー状の原料を、実施例 1 と同一の条件で加圧注入し、磁界中で湿式成形を行った。これによって  $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$  の成形体を得た。

#### 【0060】

成形体の密度は  $4.35 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $4.35 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を実施例 1 と同じ条件で脱油、焼結し、 $\phi 20.2 \times \phi 15.1 \times 25.9$  (外径×内径×高さ：単位 mm) の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.58 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.58 \text{ g/cc}$ ) であった。焼結体には  $500^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。この焼結体を実施例 1 と同一の条件で加工し製品寸法にしようとしたが、焼結体の機械的な強度が弱く、加工時の負荷によって割れてしまい、製品として評価することができなかった。焼結体の破片から  $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用の試料を切り出し、これを 1 mm 方向に 8 枚重ねて磁気特性を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような結果が得られた。また焼結体の組成を分析したところ、質量百分率で Nd 19.85%、Pr 8.95%、Dy 1.00%、B 1.02%、Al 0.10%、Co 2.00%、Cu 0.10%、O 0.16%、C 0.07%、N 0.04%、P 0.09%、残部 Fe という分析結果を得た。

#### 【0061】

##### (比較例 2)

実施例 1 と同じ粗粉を、実施例 1 と同一条件で微粉碎し、微粉碎粉を同じ要領で鉍物油 (スーパーゾル PA30、出光興産製) に回収してスラリー状の原料とした。鉍物油と回収微粉との質量比率は 1:3 となるようにした。微粉碎粉の平均粒径は  $4.5 \mu\text{m}$  であった。鉍物油や回収後のスラリー状の原料には、次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液や次亜リン酸ナトリウムエタノール溶液を添加混合しなかった。このスラリー状の原料を、実施例 1 と同一の条件で加圧注入し、磁界中で湿式成形したが、加圧注入時のスラリー状の原料の流動性が悪く、金型キャビティへの充填性が低下して、得られた成形体の寸法は、 $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 26.5$  (外径×内径×高さ：単位 mm) であった。

## 【0062】

成形体の密度は  $3.80 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $3.80 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を実施例1と同一の条件で脱油、焼結し、 $\phi 19.7 \times \phi 14.8 \times 23.3$  の寸法 (外径×内径×高さ: 単位mm) の焼結体を得たが、成形体の上パンチ側へのスラリー状の原料の充填性が悪いためか、焼結体の上パンチ側が楕円状に変形していた。焼結体の密度は  $7.57 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.57 \text{ g/cc}$ ) であった。変形のため、焼結体を製品寸法に加工しての製品評価はできなかった。焼結体に  $500^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施し、変形部を避けた部位から  $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用の試料を切り出し、これを  $1 \text{ mm}$  方向に8枚重ねて磁気特性を測定したところ、表1および表2に示すような値を得た。また、焼結体の組成を分析してみたところ、質量百分率で  $\text{Nd } 19.85\%$ 、 $\text{Pr } 8.95\%$ 、 $\text{Dy } 1.00\%$ 、 $\text{B } 1.02\%$ 、 $\text{Al } 0.10\%$ 、 $\text{Co } 2.00\%$ 、 $\text{O } 0.16\%$ 、 $\text{C } 0.07\%$ 、 $\text{N } 0.06\%$ 、残部  $\text{Fe}$  という分析結果を得た。この焼結体を EPMMA でライン分析したが、図5に示すように、実施例1、実施例2の焼結体で存在した P のピークは確認できなかった。

## 【0063】

## (比較例3)

実施例1で作製したスラリー状の原料を、実施例1と同一の条件で金型キャビティに加圧注入し、磁界中で湿式成形した。ただし、スラリー注入孔の中心軸線の方法を金型コアの中心への方法とした ( $\theta = 0^\circ$ )。その他の条件は、全て実施例1と同一とした。この結果、 $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$  (外径×内径×高さ: 単位mm) の寸法の成形体を得た。成形体の密度は  $4.29 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $4.29 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を実施例1と同じ条件で脱油、焼結し、 $\phi 20.1 \times \phi 15.1 \times 25.9$  (外径×内径×高さ: 単位mm) の寸法の焼結体を得たが、焼結体の注入孔と  $180^\circ$  反対の位置に、長手方向にクラックが発生していた。焼結体の密度は  $7.60 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.60 \text{ g/cc}$ ) であった。クラックの存在のため、この焼結体の製品寸法への加工はできなかった。クラックを避けた部位から  $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用の試料を切り出し、これを  $1 \text{ mm}$  方向に8枚重ねて磁気特性を測

定したところ、表1および表2に示すような値を得た。

#### 【0064】

(比較例4)

実施例1で作製したスラリー状の原料を、実施例1と同一の条件で金型キャビティに加圧注入し、磁界中で湿式成形した。ただし、金型キャビティにあらかじめ印加する配向磁界の強度のみは  $7.9 \times 10^{-2} \text{ kA/m}$  (即ち、 $1.0 \text{ kOe}$ ) とした。この結果、 $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$  (外径×内径×高さ: 単位mm) の寸法の成形体を得た。成形体の密度は  $4.32 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $4.32 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を実施例1と同じ条件で脱油、焼結し、 $\phi 20.3 \times \phi 15.2 \times 25.8$  (外径×内径×高さ: 単位mm) の寸法の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.59 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  ( $7.59 \text{ g/cc}$ ) であった。この焼結体に  $500^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。この焼結体を加工し、 $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$  の製品寸法に仕上げ、4極着磁を行って表面磁束密度の測定を行ったが、表1および表2に示すようにピーク値の値は、実施例1に比べて低い値であった。また、焼結体から  $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用の試料を切り出し、これを  $1 \text{ mm}$  方向に8枚重ねて磁気特性を測定したところ、表1および表2に示すように実施例1に比べて低い値であった。

#### 【0065】

(実施例6)

質量百分率でNd 22.00%、Pr 5.50%、Dy 5.00%、B 1.03%、Al 0.08%、Co 1.00%、Cu 0.12%、Ga 0.10%、O 0.09%、C 0.03%、N 0.015%、残部Feの組成を有するR-Fe-B系永久磁石用の粗粉をジェットミルに装入し、ジェットミルの内部を $\text{N}_2$ ガスで置換し、この $\text{N}_2$ ガスの雰囲気下で、粉碎圧力  $6.4 \times 10^5 \text{ Pa}$  ( $6.5 \text{ kgf/cm}^2$ )、粗粉の供給量  $20 \text{ kg/h}$  の条件で微粉碎した。粉碎中のジェットミルの内部には微量の酸素を導入し、 $\text{N}_2$ ガス中の酸素濃度が0.080~0.120% (体積%) になるように制御しながら微粉碎を行った。得られた微粉碎粉の粒径は  $5.0 \mu\text{m}$  であった。また、その組成はNd 22.00%、P

r 5.50%、Dy 5.00%、B 1.03%、Al 0.08%、Co 1.00%、Cu 0.12%、Ga 0.10%、O 0.48%、C 0.06%、N 0.015%、残部 Fe であった。この微粉碎粉を鉍物油（スーパーゾル PA30、出光興産製）と混ぜてスラリー状の原料とした。鉍物油には、鉍物油に対する次亜リン酸ナトリウムの純分が、質量百分率で 0.2% になるように、5% 次亜リン酸ナトリウムグリセリン溶液を、あらかじめ添加混合しておいた。また鉍物油と回収微粉碎粉の質量比率は 1 : 3 になるようにして行った。このようにして作製したスラリー状の原料を、実施例 1 と同一の条件で、円周方向に配向磁界が印加されたリング状の金型キャビティの中に加圧注入し、磁界中で湿式成形した。これによって  $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$ （外径×内径×高さ：単位 mm）の成形体を得た。

#### 【0066】

成形体の密度は  $4.45 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ （即ち、 $4.45 \text{ g/cc}$ ）であった。この成形体を  $6.7 \times 10 \text{ Pa}$ （即ち、 $5 \times 10^{-4} \text{ Torr}$ ）の減圧下で、 $1070^\circ\text{C} \times 3 \text{ h}$  の条件で焼結し、 $\phi 20.3 \times \phi 15.1 \times 25.8$ （外径×内径×高さ：単位 mm）の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.61 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ （即ち、 $7.61 \text{ g/cc}$ ）であった。焼結体には  $550^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。この焼結体を  $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$ （外径×内径×高さ：単位 mm）の製品寸法に加工し、8 極着磁を行った。表面磁束密度の測定を行ったところ、表 1 および表 2 に示すような値を得た。また、焼結体から実施例と同じ寸法の測定用の試料を切り出し、磁気特性を測定したところ、表 1 および表 2 に示すような良好な値を得た。また、焼結体の組成を分析したところ、Nd 22.00%、Pr 5.50%、Dy 5.00%、B 1.03%、Al 0.08%、Co 1.00%、Cu 0.12%、Ga 0.10%、O 0.46%、C 0.06%、N 0.015%、P 0.02%、残部 Fe という分析結果を得た。

#### 【0067】

（比較例 5）

実施例 6 で作製した乾粉の微粉碎粉を鉍物油と混合せずに、乾粉のまま実施例 6 の金型キャビティに、上パンチを上げて金型キャビティ上方開口部から振り込



み方式で充填し、微粉碎粉を充填した後、配向磁界  $0.24 \text{ kA/m}$  (即ち、 $3 \text{ kOe}$ ) を印加し、この配向磁界を印加した状態で、成形圧力  $7.8 \times 10^7 \text{ Pa}$  (即ち、 $0.8 \text{ ton/cm}^2$ ) で磁界中成形して、 $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30.0$  (外径×内径×高さ：単位mm) の寸法の成形体を作製した。成形体の密度は  $3.78 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $3.78 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を  $2.7 \times 10^{-3} \text{ Pa}$  (即ち、 $2 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ ) の減圧下で、 $1070^\circ\text{C} \times 3 \text{ h}$  の条件で焼結し、 $\phi 20.1 \times \phi 15.0 \times 25.9$  (外径×内径×高さ：単位mm) の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.59 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.59 \text{ g/cc}$ ) であった。この焼結体に  $550^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。さらに機械加工によって  $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$  (外径×内径×高さ：単位mm) の製品形状とした。これを 8 極着磁し、その表面磁束密度を測定したところ、表 1 および表 2 に示すように実施例 6 より低い値であった。また、焼結体から  $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用試料を切り出し、 $1 \text{ mm}$  の方向に 8 枚重ねとして磁気特性を測定したところ、表 1 および表 2 に示すように、実施例 6 の値に比べて低い値であった。

#### 【0068】

##### (比較例 6)

実施例 6 で作製した乾粉の微粉碎粉を鉱物油と混合せずに、乾粉のまま金型キャビティに、上パンチを上げて金型キャビティ上方開口部から振り込み方式で充填した。この場合、使用した金型は、キャビティ空間を形成する金型ダイスの内周部の磁性材質部の長手方向の寸法が、実施例 6 で使用した金型ダイスに比べて  $1/3$  の長さであるものを使用した。キャビティの深さをこの  $1/3$  の長さまでとし、ここに乾粉の微粉碎粉を振り込んで充填し、その後  $0.32 \text{ kA/m}$  (即ち、 $4 \text{ kOe}$ ) の配向磁界を印加し、この配向磁界の下で成形圧力  $7.8 \times 10^7 \text{ Pa}$  (即ち、 $0.8 \text{ ton/cm}^2$ ) にて成形した。次いで、配向磁界の印加を切り、この成形体をロックアウトせずに下パンチを降下させて、この成形体の上部に最初と同じ容積のキャビティ空間を形成し、ここに再度微粉碎粉を振り込んで充填し、成形圧力  $7.8 \times 10^7 \text{ Pa}$  (即ち、 $0.8 \text{ ton/cm}^2$ ) にて追加成形した。さらに同じ要領で 3 度目の充填と成形を行った。この 3 段重ねの

成形によって、 $\phi 24.5 \times \phi 17.4 \times 30:0$  (外径×内径×高さ:単位mm) の成形体を作製した。

#### 【0069】

成形体の密度は  $3.74 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $3.74 \text{ g/cc}$ ) であった。この成形体を、 $6.7 \text{ Pa}$  (即ち、 $5 \times 10^{-5} \text{ Torr}$ ) の減圧下で、 $1070^\circ\text{C} \times 3 \text{ h}$  の条件で焼結し、 $\phi 20.0 \times \phi 14.9 \times 26.1$  (外径×内径×高さ:単位mm) の焼結体を得た。焼結体の密度は  $7.58 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$  (即ち、 $7.58 \text{ g/cc}$ ) であった。この焼結体に  $550^\circ\text{C} \times 2 \text{ h}$  の熱処理を施した。さらに機械的加工によって  $\phi 19.6 \times \phi 15.4 \times 25.0$  (外径×内径×高さ:単位mm) の製品形状とした。これを8極着磁し、その表面磁束密度を測定したところ、表1および表2に示すように比較例5よりは高い値であったが、実施例6よりは低い値であった。また、焼結体から  $5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  の測定用試料を切り出し、 $1 \text{ mm}$  の方向に8枚重ねとして磁気特性を測定したところ、表1および表2に示すように、比較例5の値に比べて高い値であったが、実施例6に比べると低い値であった。また、3段重ね成形の継ぎ目部が、焼結体では表面磁束密度の局所的な低下となり、製品をモータに組み込んだ時のモータのコギング特性は、実施例6の磁石を組み込んだ場合に比べて悪いものであった。

#### 【0070】

##### 【発明の効果】

本発明にかかる構成と製法を用いることによって、変形やクラックの発生が無く且つ磁氣的配向性に優れたラジアル異方性焼結型 R-Fe-B 系希土類永久磁石を製造することができる。

##### 【図面の簡単な説明】

##### 【図1】

本発明にかかる実施例の成形装置を説明するための概略図である。

##### 【図2】

焼結体から測定用の試料を切り出す様子を示す概略斜視図である。

##### 【図3】

焼結体を E P M A でライン分析したグラフである。

【図 4】

焼結体を E P M A でライン分析したグラフである。

【図 5】

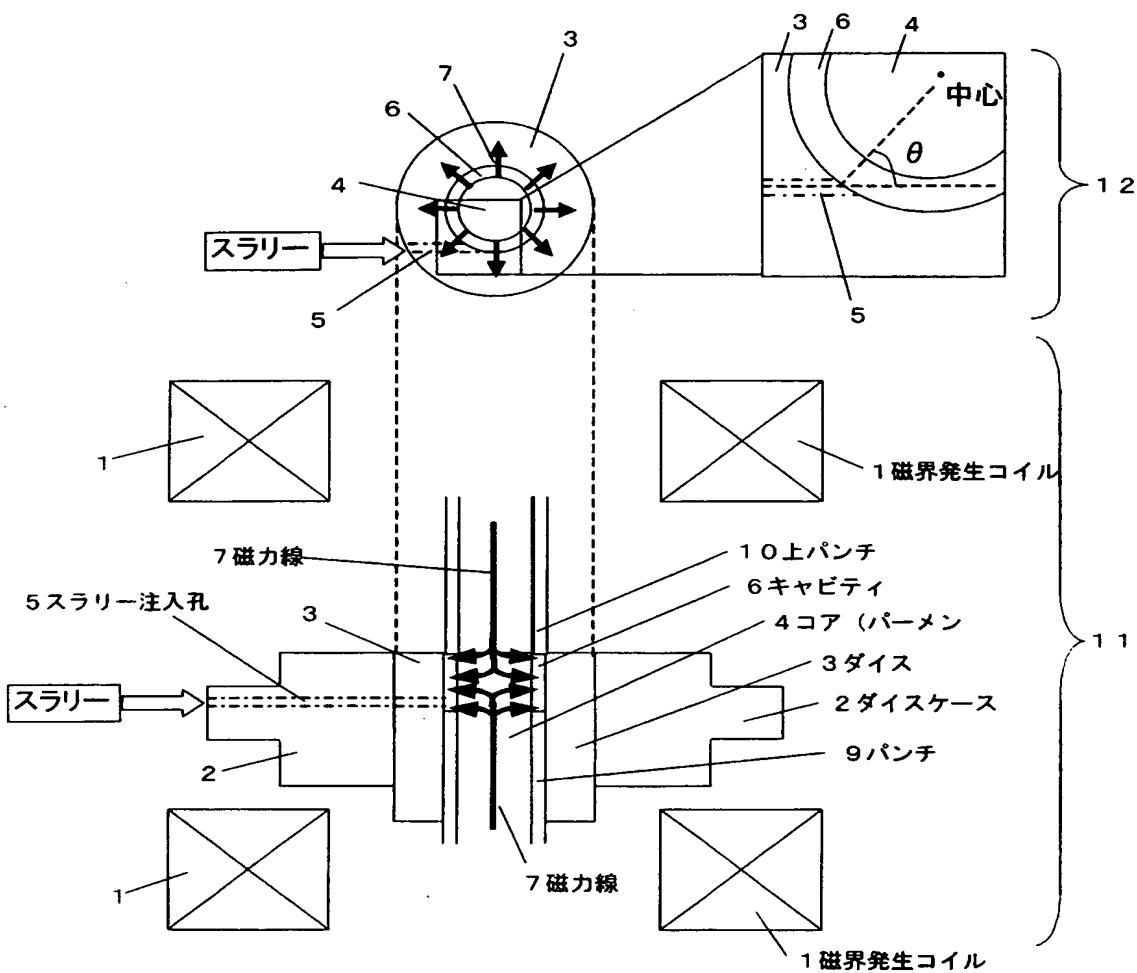
焼結体を E P M A でライン分析したグラフである。

【符号の説明】

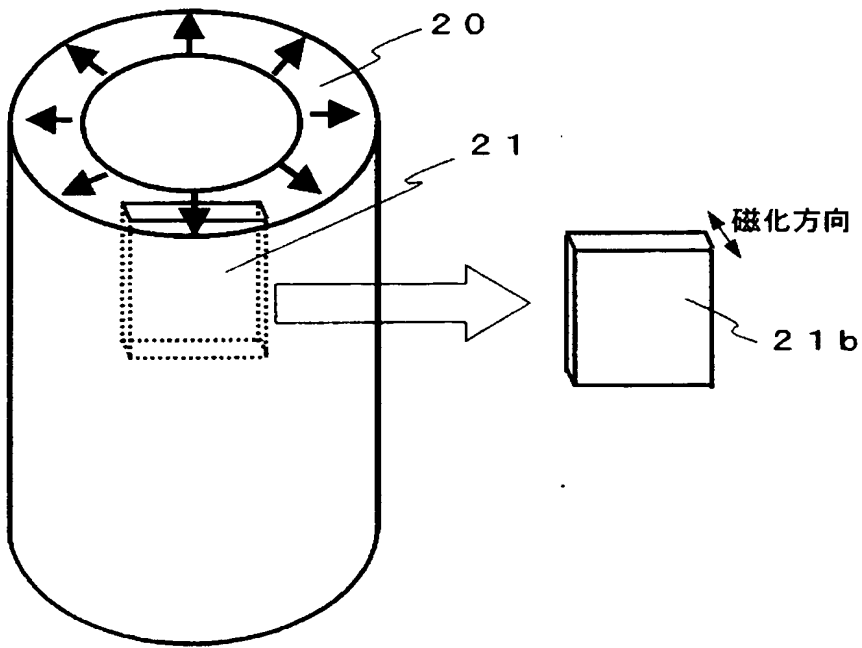
- 1 磁界発生コイル、 2 ダイスケース、 3 ダイス、 4 コア、  
5 スラリー注入孔、 6 キャビティ、 7 磁力線、 9 パンチ、  
1 0 上パンチ、 1 1 成形装置の縦断面、 1 2 ダイス近傍の横断面、  
2 0 焼結体、 2 1 切り出す前の試料、 2 1 b 測定用の試料

【書類名】 図面

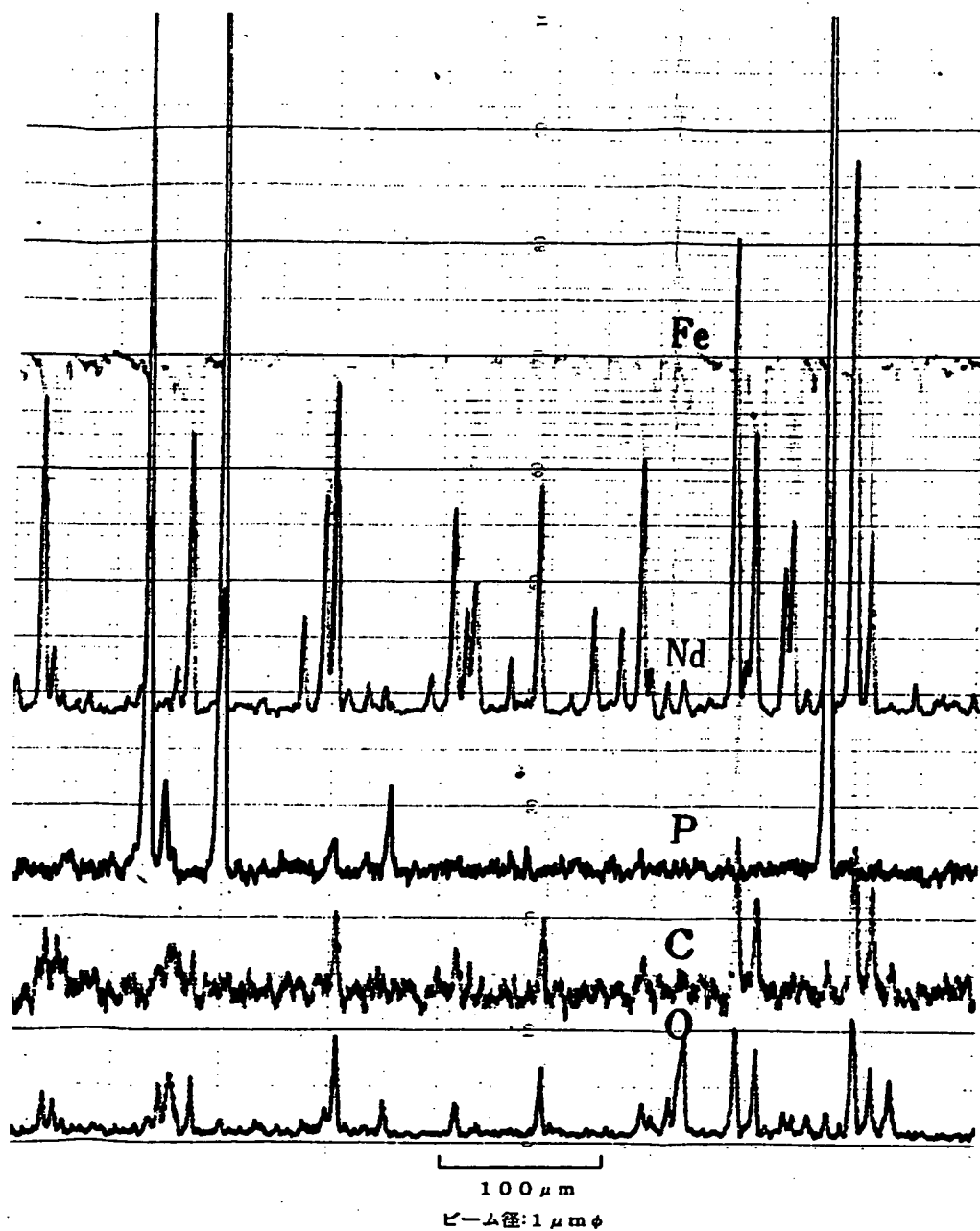
【図 1】



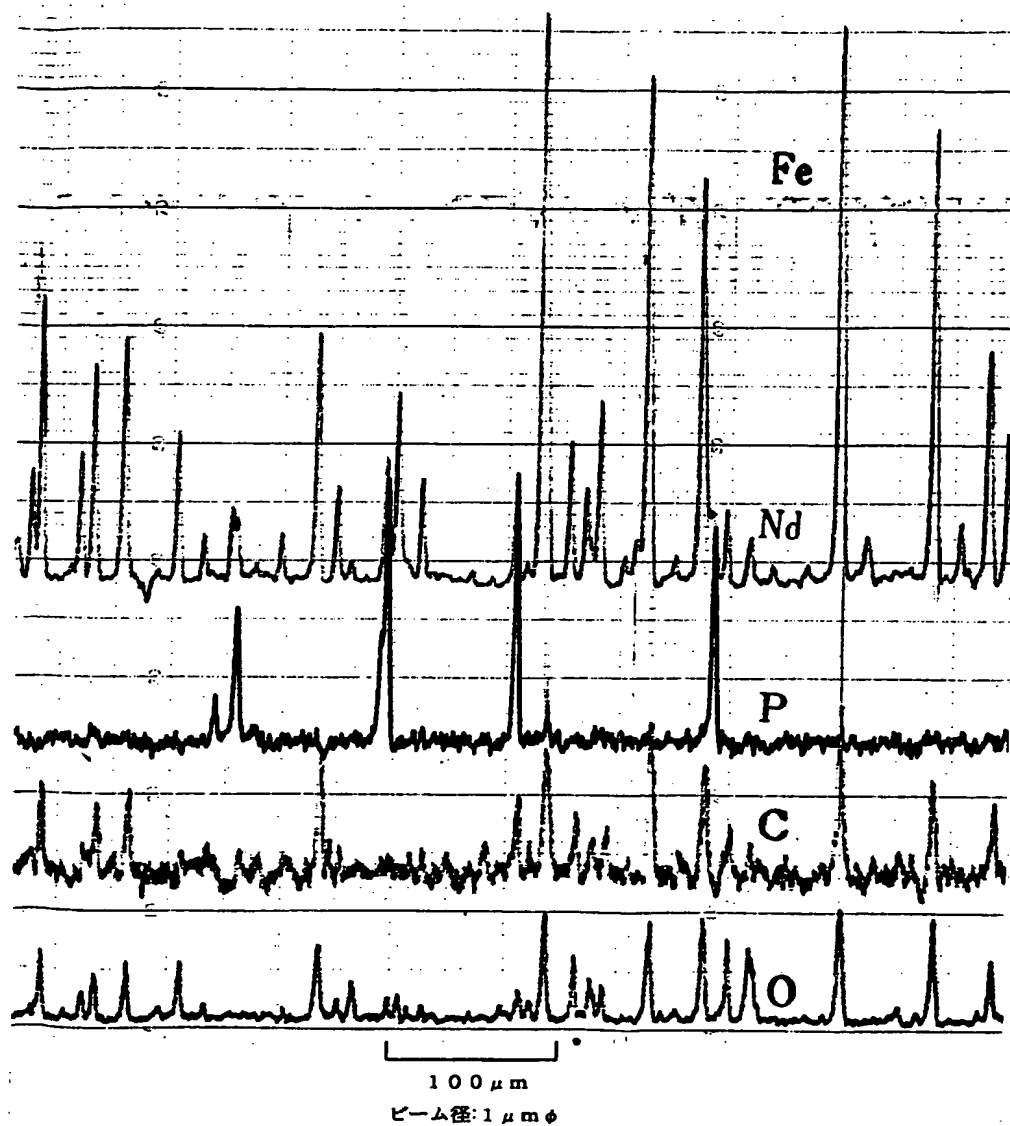
【図 2】



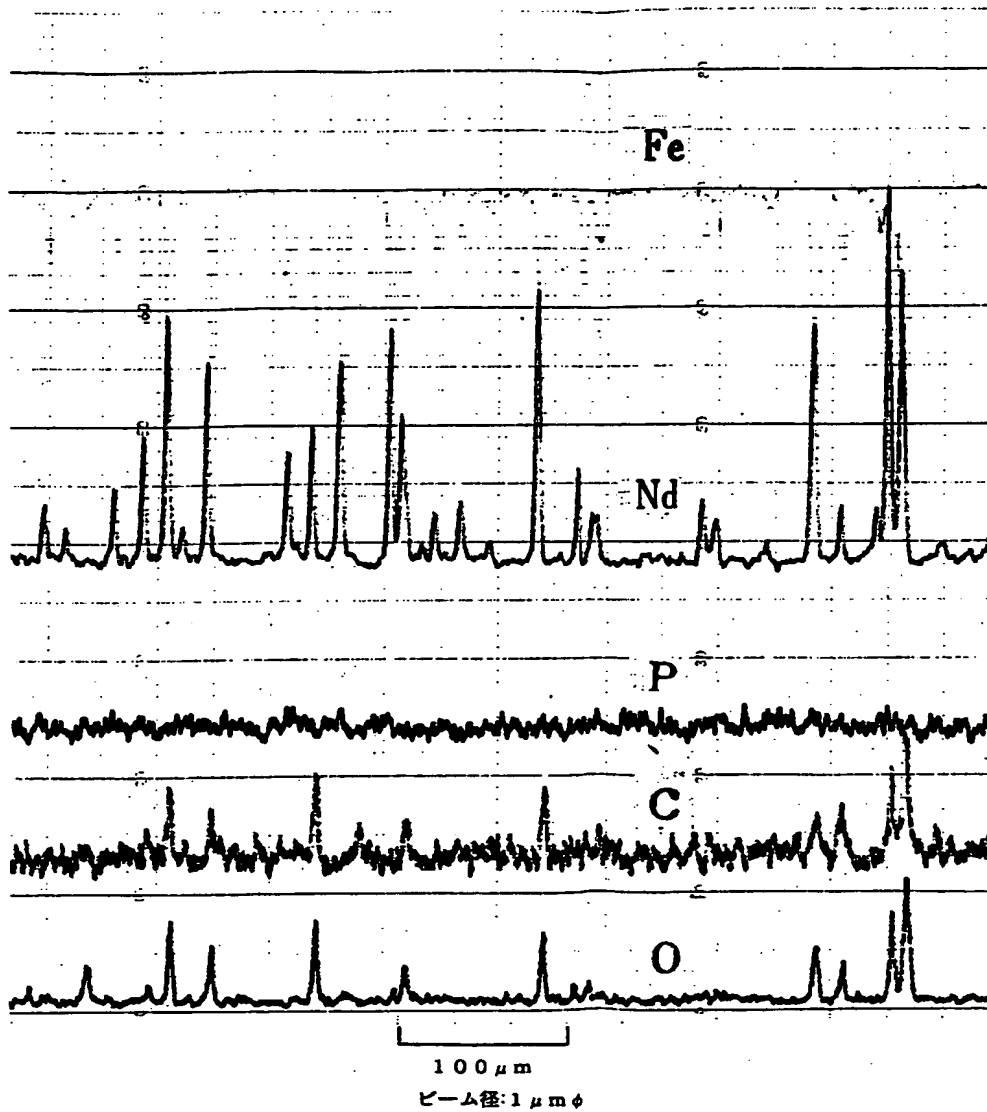
【図 3】



【図 4】



【図 5】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 変形やクラックの発生が無く且つ磁氣的配向性に優れたラジアル異方性焼結型 R - F e - B 系希土類永久磁石とその製造方法を提供する。

【解決手段】 所定の組成を有する R - F e - B 系永久磁石用の粗粉を、実質的に無酸素の窒素ガス又はアルゴンガスあるいはこれらの混合ガス中で、ジェットミル粉碎して微粉碎粉とし、前記微粉碎粉を大気に触れさせずに直接鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油中に回収してスラリー状の原料とし、前記スラリー状の原料を磁界を印加した金型キャビティ内に加圧注入し、磁界を印加したまま湿式成形して成形体とし、成形体を減圧下で加熱して成形体から鉍物油又は合成油あるいはこれらの混合油を除去した後、成形体を真空中で焼結して焼結体とする永久磁石の製造方法を用いる。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2 0 0 2 - 3 6 2 3 9 1
受付番号	5 0 2 0 1 8 9 4 0 6 5
書類名	特許願
担当官	第七担当上席 0 0 9 6
作成日	平成 1 4 年 1 2 月 1 6 日

< 認定情報・付加情報 >

【提出日】	平成14年12月13日
-------	-------------

次頁無

特願 2 0 0 2 - 3 6 . 2 3 9 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 5 0 8 3 ]

1. 変更年月日  
[変更理由]

住 所  
氏 名

1 9 9 0 年 8 月 1 0 日

新規登録

東京都千代田区丸の内 2 丁目 1 番 2 号  
日立金属株式会社

2. 変更年月日  
[変更理由]

住 所  
氏 名

1 9 9 9 年 8 月 1 6 日

住所変更

東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号  
日立金属株式会社